PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6:

C09C 1/00, C09D 5/36, 11/02, C08K 9/02, A61K 7/00

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

WO 99/61529

A1

(43) Internationales
Veröffentlichungsdatum:

2. Dezember 1999 (02.12.99)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP99/03423

(22) Internationales Anmeldedatum:

18. Mai 1999 (18.05.99)

(30) Prioritätsdaten:

198 23 866.5

28. Mai 1998 (28.05.98)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): MERCK PATENT GMBH [DE/DE]; Frankfurter Strasse 250, D-64293 Darmstadt (DE).

(72) Erfinder; und

- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): VOGT, Reiner [DE/DE]; Schulzweg 19, D-64289 Kranichstein (DE). SCHOEN, Sabine [DE/DE]; Gundolfstrasse 25, D-64287 Darmstadt (DE). SCHÜL, Norbert [DE/DE]; Tulpenweg 6, D-64646 Heppenheim (DE). OSTERRIED, Karl [DE/DE]; Messeler Weg 20 b, D-64807 Dieburg (DE). MUNZ, Johann [DE/DE]; Friedrich-Ebert-Strasse 10, D-68649 Groß-Rohrheim (DE).
- (74) Gemeinsamer Vertreter: MERCK PATENT GMBH; Postfach, D-64271 Darmstadt (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TI, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

(54) Title: PIGMENT MIXTURE

(54) Bezeichnung: PIGMENTMISCHUNG

(57) Abstract

The invention relates to pigment mixtures consisting of at least two constituents, constituent A being SiO₂ flakes coated with one or several metal oxides and/or metals and constituent B being effect pigments. The invention also relates to the use of said pigment mixtures in paints, dyes, printing inks, master batches, plastics and cosmetic formulations.

(57) Zusammenfassung

Die vorliegende Erfindung betrifft Pigmentmischungen bestehend aus mindestens zwei Komponenten, wobei Komponente A mit ein oder mehreren Metalloxiden und/oder Metallen beschichtete SiO2-Flakes und Komponente B Effektpigmente sind, sowie deren Verwendung in Lacken, Farben, Druckfarben, Masterbatches, Kunststoffen und kosmetischen Formulierungen.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

	A The sections	ES	Swamian	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AL	Albanien	FI	Spanien Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AM	Armenien		• •	LU		SN	Senegal
AT	Osterreich	FR	Frankreich		Luxemburg	SZ	Swasiland
ΑU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland		
ΑZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungam	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	ΙE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	$\mathbf{U}\mathbf{Z}$	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Келіа	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neusceland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		•
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

5

25

Pigmentmischung

Die vorliegende Erfindung betrifft Pigmentmischungen bestehend aus mindestens zwei Komponenten, wobei Komponente A mit ein oder mehreren Metalloxiden und/oder Metallen beschichtete SiO₂-Flakes und Komponente B ein oder mehrere beschichtete oder unbeschichtete Effektpigmente sind, sowie deren Verwendung in Lacken, Farben, Druckfarben, Kunststoffen und kosmetischen Formulierungen.

- Deckvermögen und Glanz sind bei plättchenförmigen Pigmenten oftmals nur schwer gleichzeitig in befriedigendem Ausmaß zu realisieren. So zeichnen sich etwa mit einer oder mehreren dünnen Metalloxidschichten belegte Glimmerplättchen oder SiO₂-Flakes durch Interferenzfarben und einen hohen Glanz, gleichzeitig aber auch wegen des durchsichtigen
 Substrats durch eine hohe Transparenz und damit ein vergleichsweises geringes Deckvermögen, aus.
- So wird in der EP 0 562 329 ein Pigmentgemisch beansprucht enthaltend eisenoxidbeschichtete Aluminiumflakes in Kombination mit eisenoxidbeschichteten Glimmerpigmenten.
 - Aus der DE-A-42 40 511 ist eine Pigmentmischung bekannt, die aus einem Interferenzpigment und einem plättchenförmigen Farbpigment besteht. Das Interferenzpigment sind mit Metalloxiden beschichtete Glimmer- oder SiO₂-Flakes und das Farbpigment können farbige, unbeschichtete SiO₂-Flakes sein. Dieses Pigmentgemisch wird in Lacke, Druckfarben oder Kunststoffen eingearbeitet.
- Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es eine Pigmentmischung
 bereitzustellen, die sich durch ein relativ hohes Deckvermögen
 auszeichnet und sich gut in das jeweilige Anwendungssystem einarbeiten
 läßt und bei der gleichzeitig eine Trennung Pigment/Farbmittel im System
 weitgehend ausgeschlossen ist.
- 35 Überraschenderweise wurde nun eine Pigmentmischung gefunden, die keine der oben angegebenen Nachteile aufweist. Das erfindungsgemäße

WO 99/61529 PCT/EP99/03423 - 2 -

Pigmentgemisch besteht aus mindestens zwei Komponenten, wobei Komponente A mit ein oder mehreren Metalloxiden beschichtete SiO₂-Flakes und Komponente B ein oder mehrere Effektpigmente sind. Durch die Zumischung der Effektpigmente zu den beschichteten SiO₂-Flakes kann den Anwendungssystemen ein Mehrfachflop verliehen werden, der Farbeffekt wird verstärkt und neuartige Farbeffekte werden erzielt.

Gegenstand der Erfindung ist somit ein Pigmentgemisch bestehend aus mindestens zwei Komponenten, wobei Komponente A mit ein oder mehreren Metalloxiden und/oder Metallen beschichtete SiO₂-Flakes und Komponente B ein oder mehrere Effektpigmente sind.

Gegenstand der Erfindung sind ebenfalls die Formulierungen, wie z. B. Farben, Lacke, Druckfarben, Kunststoffe, Agrarfolien und kosmetische Formulierungen, die das erfindungsgemäße Pigmentgemisch enthalten.

Die beschichteten SiO₂-Flakes können in jedem Verhältnis mit den Effektpigmenten gemischt werden. Vorzugsweise ist das Verhältnis von Komponente A zu Komponente B 1 : 10 bis 10 :1, insbesondere 3 : 1 bis 5 : 1.

Die vorzugsweise nach der WO 93/08237 auf einem endlosen Band hergestellten SiO₂-Flakes basieren auf einer plättchenförmigen, transparenten Matrix und besitzen in der Regel eine Dicke zwischen 0,1 und 5 μm, insbesondere zwischen 0,2 und 2,0 μm. Die Ausdehnung in den beiden anderen Dimensionen beträgt üblicherweise zwischen 1 und 250 μm, vorzugsweise zwischen 2 und 100 μm, und insbesondere zwischen 5 und 40 μm. Die SiO₂-Flakes werden mit ein oder mehreren Metalloxidschichten und/oder Metallschichten versehen. Geeignete Metalloxide oder Metalloxidgemische sind beispielsweise Titandioxid, Zirkonoxid, Zinkoxid, Eisenoxide und/oder Chromoxid, insbesondere TiO₂ und/oder Fe₂O₃. Die Beschichtung der SiO₂-Flakes kann z.B. erfolgen wie in der WO 93/08237 (naßchemische Beschichtung) oder DE-OS-196 14 637 (CVD-Verfahren) beschrieben.

5

10

20

25

Anstelle der äußeren Metalloxidschicht kann auch eine semitransparente Schicht eines Metalls verwendet werden. Geeignete Metalle dafür sind beispielsweise Cr, Ti, Mo, W, Al, Cu, Ag, Au, oder Ni. Bevorzugte Pigmente weisen folgenden Schichtaufbau auf: SiO₂-Flakes + Metall + SiO₂ + Metalloxid.

Zur Erziehung spezieller Farbeffekte können in die hoch- bzw. niedrigbrechenden Metalloxidschichten zusätzlich noch feinteilige Partikel im Nanometergrößenbereich eingebracht werden. Als geeignet dafür erweisen sich beispielsweise feinteiliges TiO₂ oder feinteiliger Kohlenstoff (Ruß) mit Teilchengrößen im Bereich von 10 - 250 nm. Durch die lichtstreuenden Eigenschaften derartiger Partikel kann gezielt auf Glanz und Deckvermögen Einfluß genommen werden. Vorzugsweise sind die SiO₂-Flakes mit ein oder mehreren Metalloxiden beschichtet.

15

20

25

0021520A1 | -

10

5

Als Komponente B für die erfindungsgemäße Pigmentmischung sind alle dem Fachmann im Effektpigmentsektor gängigen Effektpigmente, wie z.B. Metalleffektpigmente, wie Aluminium, Kupfer, Zink, Zinn und ihre Legierungen geeignet. Aluminium- und Goldbronzelegierungen sind bevorzugt zu nennen, insbesondere solche, die eine Partikelgröße von 2 bis 40 μm aufweisen. Bevorzugt enthalten die erfindungsgemäßen Pigmentgemische beschichtetes plättchenförmiges Eisenoxid, Aluminiumflakes oder beschichtete Aluminiumflakes. Derartige Effektpigmente werden von der BASF unter dem Namen Paliocrom[®], von den Eckart-Werken unter dem Namen Standard[®] und von der Firma Flex vertrieben. Weiterhin zu nennen sind Perlglanzpigmente, mit Metalloxiden, wie z.B. TiO₂, Fe₂O₃, beschichtete Al₂O₃-Flakes, Graphitplättchen, BiOCI oder Glasflakes.

Perlglanzpigmente, mit ein oder mehreren Metalloxiden beschichtete

Glimmerschuppenpigmente, sind erhältlich z.B. von der Fa. Merck KGaA,
Darmstadt, unter dem Handelsnamen Iriodin®. Letztere sind z.B. bekannt
aus den deutschen Patenten und Patentanmeldungen 14 67 468,
19 59 998, 20 09 566, 22 14 545, 22 15 191, 22 44 298, 23 13 331,
25 22 572, 31 37 808, 31 37 809, 31 51 343, 31 51 354, 31 51 355,
32 11 602 und 32 53 017. Insbesondere werden mit TiO₂ und/oder Fe₂O₃

beschichtete Glimmerpigmente eingesetzt. Als Schichtsilikat sind sowohl der natürliche als auch der synthetische Glimmer geeignet.

Die erfindungsgemäße Pigmentmischung ist einfach und leicht handzuhaben. Die Pigmentmischung kann durch einfaches Einrühren in das Anwendungssystem eingearbeitet werden. Ein aufwendiges Mahlen und Dispergieren der Pigmente ist nicht erforderlich.

Die erfindungsgemäße Pigmentmischung kann zur Pigmentierung von
Lacken, Druckfarben, Kunststoffen, Agrarfolien, Knopfpasten, Saatgutbeschichtung, Lebensmitteleinfärbung, Arzneimittelüberzügen oder
kosmetischen Formulierung verwendet werden. Die Konzentration der
Pigmentmischung im zu pigmentierendem Anwendungssystem liegt in der
Regel zwischen 0,01 und 50 Gew.%, bevorzugt zwischen 0,1 und 5
Gew.% bezogen auf den Gesamtfestkörpergehalt des Systems. Sie ist in
der Regel abhängig vom konkreten Anwendungsfall.

Kunststoffe enthaltend das erfindungsgemäße Pigmentgemisch in Mengen von 0,1 bis 50 Gew. %, insbesondere 0,5 bis 7 Gew.%, zeichnen sich häufig durch einen besonderen Sparkle-Effekt aus.

Im Lackbereich, insbesondere im Automobillack, wird das Pigmentgemisch in Mengen von 0,5-10 Gew.% eingesetzt. Das Mischungsverhältnis der beschichteten SiO₂-Flakes mit Komponente B, insbesondere beschich-25 teten oder unbeschichteten Aluminiumflakes, hängt vom gewünschten Effekt ab. Vorzugsweise werden die SiO2-Flakes mit Komponente B im Verhältnis von 5 : 1, insbesondere von 3 : 1 eingesetzt. Im Lack hat die erfindungsgemäße Pigmentmischung den Vorteil, daß der angestrebte Farbflop-Effekt durch eine einschichtige Lackierung 30 (Einschichtsysteme bzw. als Basecoat im 2-Schichtaufbau) erzielt wird. Dieser Farbflop ist auch im diffusen Licht sehr deutlich ausgeprägt. Im Vergleich mit Lackierungen, die ein Interferenzpigment enthalten statt der beschichteten SiO₂-Flakes, zeigen Lackierungen mit der erfindungsgemäßen Pigmentmischung eine deutliche Tiefenwirkung und einen 35 Glitzereffekt sowie einen starken Farbflop.

5

Bei der Pigmentierung von Bindemittelsystemen, z. B. für Farben und Druckfarben für den Tiefdruck, Offsetdruck oder Siebdruck, haben sich insbesondere Pigmentgemische bestehend aus beschichteten SiO₂-Flakes mit Stapa® - Aluminium- und Goldbronzepasten der Fa. Eckart-Werke - als besonders geeignet erwiesen. Das Pigmentgemisch wird in die Druckfarbe in Mengen von 2-50 Gew.%, vorzugsweise 5-30 Gew.%, und insbesondere 8-15 Gew.% eingearbeitet. Das Mischungsverhältnis von Komponente A zu Komponente B liegt vorzugsweise im Bereich von 1 : 10 bis 10 : 1. Die Druckfarben enthaltend das erfindungsgemäße Pigmentgemisch zeigen reinere Farbtöne und sind aufgrund der guten Werte für die Viskosität besser verdruckbar.

Gegenstand der Erfindung sind ebenfalls Pigmentpräparationen enthaltend beschichtete oder unbeschichtete SiO₂-Flakes, Metalleffektpigmente, Bindemittel und gegebenenfalls Additive, die in Form eines weitgehend lösungsmittelfreien, rieselfähigen Granulats vorliegen. Derartige Granulate enthalten bis zu 95 Gew.% des Pigmentgemisches. Eine Pigmentzubereitung, bei der das erfindungsgemäße Pigmentgemisch mit einem Bindemittel und mit Wasser oder einem organischen Lösemittel und gegebenenfalls Additiven angepastet wird, und die Paste nachfolgend getrocknet und in eine kompakte Teilchenform, z.B. in Granulate, Pellets, Briketts, Masterbatch, Tabletten, gebracht wird, ist insbesondere als Vorprodukt von Druckfarben geeignet.

Gegenstand der Erfindung sind somit auch Formulierungen enthaltend das erfindungsgemäße Pigmentgemisch.

Die nachfolgenden Beispiele sollen die Erfindung erläutern, ohne sie jedoch zu begrenzen.

35

30

5

10

15

Beispiele

_						
н.		pie	. 1	•	20	_
יע	こいろ	שוע	1	. –	a_{\cup}	•

Formulierungen bestehend aus

5

- 2,50 % mit Fe₂O₃ beschichteten SiO₂-Flakes mit einer Teilchengröße von 5 40 μm (Fa. Merck KGaA)
- 1,50 % Monastralgrün 6Y spez. (Fa. Zeneca)
- 0,50 % Cappoxytgelb 4214 (Fa. Cappelle)
- 10 0,03 % Farbruß FW 200 (Fa. Degussa)
 - 0,40 % Dollaraluminium Alpate 7620 NS (Fa. Alcan Toyo Europe)

Rest: Basislack mit 19 % Festkörpergehalt (Acrylat-Melamin) und Verdünnermischung

15

Beispiel 2: Tiefdruck

Druckfarbe bestehend aus

- 20 70 g Bindemittel der Gebrüder Schmidt 95MB011 auf Nitrocellulosebasis mit ca. 20 % Feststoffgehalt
 - 30 g Pigment 15 g Cromal IV (Fa. Eckart) Al 14-18 μm
 15 g mit Fe₂O₃ beschichtete SiO₂-Flakes der
 Teilchengröße 5-40 μm
- 25 30 g 1-Ethoxy-2-propanol

Beispiel 3: Kunststoff

1 kg Polystyrolgranulat werden in einem Taumelmischer mit 5 g Haftmittel gleichmäßig benetzt. Dazu werden dann 35 g Fe₂O₃ beschichtete SiO₂-Flakes der Teilchengröße von 5-40 μm und 7 g Iriodin[®] 121 mit TiO₂ beschichtetes Glimmerpigment der Fa. Merck KGaA, Darmstadt, BRD mit einer Teilchengröße von 5-20 μm zugegeben und 2 min. lang gemischt

Dieses Granulat wird auf einer Spritzgießmaschine unter üblichen Bedingungen zu Stufenplättchen mit den Maßen 4 x 3 x 0,5 cm verarbeitet. Die Stufenplättchen zeichnen sich durch ihren Glanz aus.

5 Beispiel 4: Lidschatten

	Phase A	
	15,00 %	mit TiO ₂ beschichtete SiO ₂ -Flakes der Teilchengröße
		5-40 μm (Fa. Merck KGaA)
10	15,00 %	Timiron Super Blue (mit TiO ₂ beschichteter Glimmer der
		Teilchengröße 10-60 µm der Fa. Merck KGaA)
	49,50 %	Talc
	7,50 %	Solanum Tuberosum (Potato Starch)
	2,50 %	Magnesium Stearate
15		
	Phase B	
	9,14 %	Isopropyl Stearate
	0,53 %	Cetyl Palmitate
	0,53 %	Petrolatum
20	0,21 %	Parfüm
	0,11 %	Konservierung

Die Bestandteile der Phase A werden zusammengegeben und vorgemischt. Anschließend wird die Pudermischung unter Rühren tropfenweise mit der geschmolzenen Phase B versetzt. Die Puder werden bei 40 - 50 bar gepreßt.

Beispiel 5: Duschgel

30	Phase A	
	0,10 %	mit TiO ₂ beschichtete SiO ₂ -Flakes der Teilchengröße
		5-40 μm (Fa. Merck KGaA)
	0,10 %	Timiron Super Blue (mit TiO ₂ beschichteter Glimmer der
		Teilchengröße 10-60 µm der Fa. Merck KGaA)
35	0,75 %	Xanthan Gum
	ad 100.00 °	% Aqua

- 8 -

	<u>Phase B</u>	
	20,00 %	Decyl Glycoside
	6,65 %	Texapon ASV
5		Sodium Laureth Sulfate
		Magnesium Laureth Sulfate
		Sodium Laureth 8-Sulfate
		Magnesium Laureth 8-Sulfate
		Sodium Oleth Sulfate
10		Magnesium Oleth Sulfate
	0,20 %	Konservierung
	0,05 %	Parfum
	Phase C	
15	0,15 %	Citric Acid
	10,00 %	Aqua

Für Phase A wird das Pigment in das Wasser eingerührt. Xanthan Gum wird unter Rühren langsam eingestreut und gerührt, bis es gelöst ist. Die Phasen B und C werden nacheinander hinzugefügt und dabei langsam gerührt, bis alles homogen verteilt ist.

25

20

30

5

15

20

25

<u>Patentansprüche</u>

- Pigmentgemisch bestehend aus mindestens zwei Komponenten, wobei Komponente A mit ein oder mehreren Metalloxiden und/oder Metallen beschichtete SiO₂-Flakes und Komponente B Effektpigmente sind.
- Pigmentgemisch nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
 Komponente A mit TiO₂ und/oder Fe₂O₃ beschichtete SiO₂-Flakes

 sind.
 - 3. Pigmentgemisch nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß Komponente B mit ein oder mehreren Metalloxiden beschichtete Metallplättchen, Graphitplättchen, Aluminiumplättchen, Schichtsilikate, Al₂O₃-Flakes, Fe₂O₃-Flakes, TiO₂-Flakes, Glasund/oder keramische Plättchen sind.
 - 4. Pigmentgemisch nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß Komponente A und Komponente B im Verhältnis 10:1 bis 1:10 gemischt sind.
 - 5. Verwendung des Pigmentgemisches nach Anspruch 1 in Farben, Lacken, Druckfarben, Pulverlacke, Masterbatches, Kunststoffen, zur Saatguteinfärbung, in kosmetischen Formulierungen und zur Veredelung von Lebensmitteln.
 - 6. Formulierungen enthaltend ein Pigmentgemisch nach Anspruch 1.
- 7. Pigmentzubereitung enthaltend ein Pigmentgemisch nach
 30 Anspruch 1 und ein Bindemittel, dadurch gekennzeichnet, daß sie in
 Form eines weitgehend lösemittelfreien, rieselfähigen Granulats
 vorliegt.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Interr hal Application No PCT/EP 99/03423

					.,
A. CLASS IPC 6	CO9C1/00	CO9D5/36	C09D11/02	C08K9/02	A61K7/00
According t	to International Patent Cla	ssification (IPC) or to bo	th national classification a	and IPC	
	SEARCHED				
Minimum d IPC 6	ocumentation searched (classification system foll	owed by classification syr	nbols)	
Documenta	ation searched other than i	minimum documentation	to the extent that such d	ocuments are included i	n the fields searched
	data base consulted during		th (name of data base and	I, where practical, searc	ch terms used)
	ENTS CONSIDERED TO		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		
Category °	Citation of document, w	ith indication, where ap	propriate, of the relevant	passages	Relevant to claim No.
Х	16 October claims 1,	636 A (BASF A 1997 (1997-1 6 1ine 37 - lir	10-16)		1-6
X	16 October claims 1,9 column 4,	537 A (BASF / 1997 (1997-1 9 line 54 - line line 7 - line	.0-16) ne 57		1-6
Α	9 June 1994	11 A (MERCK F 4 (1994-06-09 ne application (amples)		1,3-6
			-/		
X Furth	her documents are listed in	n the continuation of bo	× С. Х	Patent family member	ers are listed in annex.
"A" docume consid "E" earlier of filing d "L" docume which citation "O" docume other of the reference of the	ont which may throw doubt is cited to establish the pu n or other special reason (ent refeming to an oral disc	ate of the art which is newance or after the internation or after the internation of the sound o	ot (or priority date and not in cited to understand the p invention occument of particular rela- cannot be considered no involve an inventive step occument of particular rela- cannot be considered to locument is combined w	after the international filing date a conflict with the application but winciple or theory underlying the evance; the claimed invention well or cannot be considered to when the document is taken alone evance; the claimed invention involve an inventive step when the ith one or more other such docution in being obvious to a person skilled same patent family
Date of the	actual completion of the in	ternational search		ate of mailing of the inte	ernational search report
1	7 September 19	99		27/09/1999	
Name and n	NL – 2280 HV Rijswi	40, Tx. 31 651 epo ni,		uthorized officer Rosenberge	~. J

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inter mail Application No
PCT/LP 99/03423

	ion) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	Dalaur - the stains the
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
4	EP 0 562 329 A (BASF AG) 29 September 1993 (1993-09-29) cited in the application claims 1,2,6	1-5

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

formation on patent family members

Interional Application No PCT/EP 99/03423

	ent document in search report		Publication date	I	Patent family member(s)	Publication date
DE	19614636	Α	16-10-1997	WO	9739065 A	23-10-1997
DE :	19614637	A	16-10-1997	WO EP	9739066 A 0892832 A	23-10-1997 27-01-1999
DE 4	4240511	Α	09-06-1994	JP US	6228456 A 5441564 A	16-08-1994 15-08-1995
EP (0562329	A	29-09-1993	DE DE FI JP US	4209242 A 59300363 D 931229 A 6016965 A 5277711 A	23-09-1993 24-08-1995 22-09-1993 25-01-1994 11-01-1994

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (July 1992)

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Interno ales Aktenzeichen PCT/EP 99/03423

KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES C08K9/02 A61K7/00 IPK 6 C09D5/36 C09D11/02 C09C1/00 Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 6 C09C Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Betr. Anspruch Nr. Kategorie® Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile DE 196 14 636 A (BASF AG) 1-6 Χ 16. Oktober 1997 (1997-10-16) Ansprüche 1,6 Spalte 4, Zeile 37 - Zeile 45 DE 196 14 637 A (BASF AG) 1-6 X 16. Oktober 1997 (1997-10-16) Ansprüche 1.9 Spalte 4, Zeile 54 - Zeile 57 Spalte 6, Zeile 7 - Zeile 15 DE 42 40 511 A (MERCK PATENT GMBH) 1.3 - 6Α 9. Juni 1994 (1994-06-09) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche; Beispiele Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu Siehe Anhang Patentfamilie IX∙ I X Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden 🤟 Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahellegend ist soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentlamilie ist Datum des Abschlusses der internationalen Recherche Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 27/09/1999 17. September 1999 Bevollmächtigter Bediensteter Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl, Rosenberger, J Fax: (+31-70) 340-3016

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internal PCT/EP 99/03423

	Ing) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	Cote Appropriate Ma
Kategorie ³	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Setr. Anspruch Nr.
Α.	EP 0 562 329 A (BASF AG) 29. September 1993 (1993-09-29) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1,2,6	1-5

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichung Jie zur selben Patentfamilie gehören

·les Aktenzeichen Interna PCT/EP 99/03423

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Datum der Patentfamilie Veröffentlichur				Datum der Veröffentlichung
DE 19614636	A	16-10-1997	WO	9739065 A	23-10-1997		
DE 19614637	Α	16-10-1997	WO EP	9739066 A 0892832 A	23-10-1997 27-01-1999		
DE 4240511	Α	09-06-1994	JP US	6228456 A 5441564 A	16-08-1994 15-08-1995		
EP 0562329	Α	29-09-1993	DE DE FI JP US	4209242 A 59300363 D 931229 A 6016965 A 5277711 A	23-09-1993 24-08-1995 22-09-1993 25-01-1994 11-01-1994		

This Page Blank (uspto)